

DERWENT-ACC-NO: 1992-102623

DERWENT-WEEK: 199213

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: High permittivity dielectric ceramic  
compsn. -  
comprising lead magnesium niobium  
titanate, lead oxide  
and tungsten oxide

PATENT-ASSIGNEE: NIPPON STEEL CORP[YAWA]

PRIORITY-DATA: 1990JP-0155054 (June 15, 1990)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PAGES	PUB-DATE	MAIN-IPC
JP 04048505 A		February 18, 1992	N/A
003	N/A		

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO
JP 04048505A	N/A	
1990JP-0155054	June 15, 1990	

INT-CL (IPC): C04B035/00, H01B003/12 , H01G004/12

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 04048505A

BASIC-ABSTRACT:

Compsn. comprises a main component compsn.  
 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  ( $x =$   
0.01-0.12), and 0.5-5.0 wt. %  $\text{PbO}$ , and 0.5-5.0 wt. %  $\text{WO}_3$ ,  
based on the main  
component compsn..

USE - Used for high permittivity ceramic capacitor  
material.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: HIGH PERMITTIVITY DIELECTRIC CERAMIC  
COMPOSITION COMPRISE LEAD  
MAGNESIUM NIOBIUM TITANATE LEAD OXIDE TUNGSTEN  
OXIDE

DERWENT-CLASS: L03 R41 R42 V01 X12

CPI-CODES: L02-G07C; L03-B03E;

EPI-CODES: V01-B03A1; X12-E01A;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1992-048218

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N1992-076635

## ⑫ 公開特許公報(A) 平4-48505

⑬ Int. Cl.<sup>3</sup>H 01 B 3/12  
C 04 B 35/00  
H 01 G 4/12

識別記号

3 1 3 A  
4 1 5 J

庁内整理番号

9059-5G  
8924-4G  
7135-5E

⑭ 公開 平成4年(1992)2月18日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全3頁)

⑮ 発明の名称 誘電体磁器組成物

⑯ 特 願 平2-155054

⑰ 出 願 平2(1990)6月15日

⑱ 発 明 者 山 田 紀 子 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社  
第1技術研究所内⑲ 発 明 者 山 本 幸 弘 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社  
第1技術研究所内⑳ 発 明 者 久 保 紘 神奈川県川崎市中原区井田1618番地 新日本製鐵株式会社  
第1技術研究所内

㉑ 出 願 人 新日本製鐵株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番3号

㉒ 代 理 人 弁理士 井上 雅生

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

誘電体磁器組成物

## 2. 特許請求の範囲

$Pb(Mg_{1-x}Nb_{2x})_{1-x}Ti_xO_3$  で表され、 $0.01 \leq x \leq 0.12$  である主成分組成物と、主成分組成物に対して 0.5～5.0重量%のPbOと0.5～5.0重量%の $WO_3$ とからなる誘電体磁器組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

## 産業上の利用分野

本発明はコンデンサの材料として用いられ、比誘電率が高く、比誘電率の温度特性が良好で、しかも低温で焼結できる誘電体磁器組成物に関するものである。

## 従来の技術

従来より、高誘電率系磁器コンデンサの材料としては、 $BaTiO_3$ を主成分とした誘電体磁器組成物が用いられている。これは、室温での比誘電率が2000～15000と高い材料であるが、焼成温度が1300～1400℃と高温であった。このため、焼成コ

ストが高くつく上、積層磁器コンデンサにおいては、生の磁器シートの上に電極をあらかじめ形成したものを複数枚積層してから焼成するので、その電極材料としては、1300℃以上の高温においても溶解したり、酸化したり、誘電体と反応したりしないような貴金属、例えば白金やパラジウムやそれらを含む合金などを用いなければならなかった。それゆえ、銀、ニッケル、銅などの安価な金属を内部電極として使用できるような低温で焼結する誘電体磁器組成物が望まれていた。このような要請を満足する組成物として、

$Pb(Mg_{1-x}Nb_{2x})O_3-PbTiO_3$ 系の材料が提示されている(特公開81-5427、特公開81-28619)。これらの組成物は比誘電率が14000～30000と高く、誘電損失が小さく、1150℃程度で焼結するものであった。しかし、これらの焼結温度は銀の融点である982℃、銅の融点である1085℃に比べると十分低いとはいえず、さらに低温で焼結する材料が望まれていた。

また、 $Pb(Mg_{1-x}Nb_{2x})O_3-PbTiO_3$ 系の誘電率の温

度変化率は、 $-25^{\circ}\text{C} \sim 85^{\circ}\text{C}$ の範囲で $20^{\circ}\text{C}$ の基準値に対して $+20\%$ 以上または $-80\%$ 以下と大きく、J I SのF特性を満足するのみであった。

発明が解決しようとする課題

$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ 系の誘電体磁器組成物は焼結温度が高く、誘電率の温度変化率が大きいという問題点があった。本発明は上記組成物の優れた誘電特性をできるだけ損なうことなく、焼結温度が低く、誘電率の温度変化率が良好な誘電体磁器組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

本発明は  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  で表され  $0.01 \leq x \leq 0.12$ である主成分と主成分に対して  $0.5 \sim 5.0$ 重量%のPbOと  $0.5 \sim 5.0$ 重量%の $\text{WO}_3$ を副成分とする磁器組成物である。

その限定理由を具体的に述べる。

$x$ が0.01未満では比誘電率の最大になる温度が低くなりすぎ、また、 $x$ が0.12を超えると比誘電率の最大になる温度が高くなりすぎるため、室温付近で高い比誘電率を得ることができず実用的で

ない。また、PbOの添加量が5.0重量%を超えると比誘電率の低下が著しい。PbOの添加量が0.5重量%未満では低温焼結性の効果がほとんど認められない。 $\text{WO}_3$ の添加量が5.0重量%をこえると焼結時に素地の変形が起きるうえ、比誘電率が低下する。 $\text{WO}_3$ の添加量が0.5重量%未満では低温焼結性の効果がほとんどが認められない上、比誘電率の温度特性の改善効果も小さい。

作用

$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  で表され  $0.01 \leq x \leq 0.12$ である主成分系において、PbOと $\text{WO}_3$ の副成分を含まない組成物では $1150^{\circ}\text{C}$ 以上の焼成温度を必要とするが、PbOと $\text{WO}_3$ の副成分を含む組成物ではPbOと $\text{WO}_3$ の間で生じる液相が焼結を促進するため、 $800 \sim 1150^{\circ}\text{C}$ の低温で焼成しても、 $7.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上焼結密度を得ることができる。また、PbOと $\text{WO}_3$ の副成分を加えることによって比誘電率の温度特性をJ I SのF特性からEおよびD特性に改善することができる。

実施例

PbO、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{TiO}_2$ を所定量秤量し、エタノールを加えてナイロンポットとジルコニアボールを用いて混合した。乾燥後、 $850^{\circ}\text{C}$ で仮焼し、PbOおよび $\text{WO}_3$ を第1表に示した割合で秤量し、エタノールを加えナイロンポットとジルコニアボールを用いて混合した。混合物を乾燥した後、ポリビニルアルコールを適量加えて $2\text{t}/\text{cm}^2$ の圧力で直径 $10\text{mm}$ 、厚さ $2\text{mm}$ の円板上に成形した。この成形体を蓋付きのマグネシアの角さやに入れ、第1表の焼結温度で2時間焼成した。焼結体の密度はアルキメデス法で測定した。焼結密度 $7.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の緻密な焼結体について焼結体を厚さ約 $1\text{mm}$ に平行研磨し金をスパッタして電極として、インピーダンスアナライザで誘電特性の測定を行った。測定は周波数 $1\text{kHz}$ 、電圧 $1\text{Vrms}$ で行った。測定結果を第1表に示した。焼結密度が $7.5\text{g}/\text{cm}^3$ 未満の焼結体については誘電特性を測定するための加工が困難であったり、測定値の信頼性に欠けたりするので、測定を行わなかった。

第 1 表

試料 No.	x	PbO (wt%)	WO <sub>3</sub> (wt%)	焼成温度 ℃	焼結密度 (g/cm <sup>3</sup> )	比誘電率 20℃	温度変化率 (%)		誘電損失 (20℃, %)
							-25℃	85℃	
1	0.01	1.0	1.0	1050	7.8	11000	-20.1	-48.5	0.4
2	0.01	1.0	1.0	1100	7.9	14000	-24.1	-54.8	0.6
3	0.01	1.0	1.0	1150	7.8	13000	-26.2	-62.4	0.6
4*	0.01	0.0	0.0	1000	5.4	—	—	—	—
5*	0.03	0.0	1.0	1000	6.9	—	—	—	—
6	0.03	0.5	0.5	1000	7.8	10200	-32.2	-53.1	0.8
7	0.03	0.5	0.5	1150	7.8	15200	-48.2	-73.1	0.8
8	0.03	3.0	2.0	950	7.7	7500	-27.3	-49.0	0.9
9*	0.03	6.0	3.0	900	7.5	2500	-3.2	-35.0	0.8
10	0.06	0.5	0.5	1000	7.8	11000	-44.0	-42.6	0.9
11	0.06	3.0	2.0	900	7.6	6800	-39.2	-35.4	2.1
12	0.06	3.0	2.0	1050	7.7	7800	-42.2	-46.8	2.1
13	0.06	0.8	0.5	1150	7.9	13000	-50.7	-54.3	2.4
14	0.06	4.5	4.5	1000	7.8	4100	-28.5	-28.8	1.7
15*	0.08	1.0	0.0	1050	7.0	—	—	—	—
16*	0.06	1.0	8.0	1050	7.1	—	—	—	—
17	0.10	3.0	2.0	950	7.7	7000	-44.1	-3.6	2.1
18	0.10	3.0	2.0	1100	7.8	8200	-54.1	-9.6	2.3
19*	0.15	1.0	1.0	1000	7.7	2100	-43.1	80.1	3.5

\* 印は、本発明外のものであり比較のために示した。

## 発明の効果

本発明によると、900～1150℃の焼成温度で、密度が高く、比誘電率が3000以上と高く、比誘電率の温度変化率が良好であり、 $\tan \delta$ にも優れた新規な磁器組成物が得られ、積層磁器コンデンサに用いた場合、内部電極に銀、銀パラジウム合金、銅のような低融点金属の使用が可能となる。

代理人弁理士 井 上 雅 生